

FEB 11 2003

## IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Werner GREND, et al.

GAU: 1711

SERIAL NO: 09/939,686

EXAMINER: Sergeant

FILED: August 28, 2001

FOR: POLYUREAS BASED ON IPDI, HDI, THEIR ISOCYANURATES AND AMINES

## REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number \_\_\_\_\_, filed \_\_\_\_\_, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number \_\_\_\_\_, filed \_\_\_\_\_, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY

Germany

APPLICATION NUMBER

100 42 322.1

MONTH/DAY/YEAR

August 29, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number \_\_\_\_\_  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s) \_\_\_\_\_
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.  
Norman F. Oblon

Registration No. 24,618



22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 03/02)Samuel H. Blech  
Registration No. 32,082



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 100 42 322.1

**Anmeldetag:** 29. August 2000

**Anmelder/Inhaber:** Degussa AG, Düsseldorf/DE

Erstanmelder:  
Degussa-Hüls AG, Frankfurt am Main/DE

**Bezeichnung:** Neue Polyharnstoffe auf der Basis von IPDI, HDI,  
deren Isocyanurate und Aminen

**IPC:** C 08 G, C 09 D

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 16. August 2001  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

HciB

**Neue Polyharnstoffe auf der Basis von IPDI, HDI, deren Isocyanurate und Aminen**

Die Erfindung betrifft neue Polyharnstoffe auf der Basis von Isophorondiisocyanat (IPDI) Hexamethylendiisocyanat (HDI) und/oder deren Isocyanurat und Aminen, insbesondere  
5 Isophorondiamin (IPD).

Polyharnstoffe sind bekannt. Sie finden Anwendung in den folgenden technischen Gebieten als Klebstoffe im Bereich Holz und Papier, Schaumstoffe, sowie Harze für den Lack- und Beschichtungsbereich (Houben-Weyl E 20/2 (1987), S. 1721-1751; Houben-Weyl XIV/2 (1963),  
10 S. 165 - 171)

Es bestand die Aufgabe, neue Polyharnstoffe zu finden, die in fester Form bei für Pulverlacken üblichen Härtungstemperaturen von 150 bis 220 °C stabil bleiben, ohne nennenswerte Mengen ( $\leq 2$  %) organischer Materialien wie auch Wasser freizusetzen.

15

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Polyharnstoffe auf Basis von Isophorondiisocyanat (IPDI) und/oder Hexamethylendiisocyanat (HDI) und/oder deren Isocyanurate und Aminen mit einem NCO/NH<sub>2</sub>-Verhältnis von 0,9 bis 1,1 zu 1 und einer mittleren Molmasse von mindestens 5.000.

20

Die neuen Polyharnstoffe enthalten als Ausgangsverbindungen Isophorondiisocyanat (IPDI), Hexamethylendiisocyanat (HDI) und Amine, insbesondere Isophorondiamin (IPD). Das IPDI und/oder HDI kann entweder als Diisocyanat oder als Isocyanurat eingesetzt werden. Ebenfalls von Vorteil und geeignet sind Mischungen aus diesen beiden Isocyanaten beziehungsweise deren  
25 Isocyanuraten.

Im Rahmen der Erfindung können alle aliphatischen, (cyclo)aliphatischen, cycloaliphatischen und aromatischen Diamine und/oder Polyamine (C<sub>5</sub> - C<sub>18</sub>) eingesetzt werden, bevorzugt wird Isophorondiamin (IPD).

30

Im allgemeinen werden Polyharnstoffe mit einem NCO/NH<sub>2</sub>-Verhältnis von 0,9 bis 1,1 zu 1 hergestellt. Bei Einsatz äquimolarer Mengen mit einem NCO/NH<sub>2</sub>-Verhältnis von 1 zu 1 werden

unendlich vernetzte, feste und spröde Polymere erhalten, die erst oberhalb von 240 °C unter Zersetzung schmelzen und in Lösemitteln unlöslich sind.

Bevorzugte Polyharnstoffe im Rahmen der Erfindung sind solche, die aus IPD und IPDI-  
5 Isocyanurat und/oder HDI-Isocyanurat und Gemischen daraus bestehen.

Weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Polyharnstoffen auf der Basis von IPDI, HDI und Aminen, insbesondere IPD, wobei das Amin in einem Lösemittel wie z. B. Toluol vorgelegt wird, zu dem anschließend unter Rühren das gegebenenfalls ebenfalls mit einem  
10 Lösemittel verdünnte Isocyanat hinzugegeben wird. Zur Erzielung eines vollständigen Umsatzes wird das Reaktionsgemisch 2 bis 3 Stunden unter Rückfluss des Lösemittels erhitzt, anschließend wird abgekühlt, das entstandene Polymer abgetrennt (Filtration) und anschließend 3 bis 6 Stunden bei 130 bis 170 °C im Vakuum getrocknet.

15 Die erfindungsgemäßen Polyharnstoffe können als Rohstoffe in der Lackindustrie, insbesondere zur Herstellung von Lacken, Farben und Beschichtungen eingesetzt werden.

Die Erfindung wird durch die folgenden Beispiele näher erläutert.

20

### Beispiele

#### Allgemeine Herstellungsmethode

In einem 2 Ltr. Dreihalskolben, ausgerüstet mit Rührer, Tropftrichter und Heizpilz, werden 70 g  
25 IPD, verdünnt in 1 000 ml Toluol, vorgelegt. Unter Rühren wird dann die äquivalente ( $\text{NH}_2 : \text{NCO} = 1 : 1$ ) Menge des entsprechenden Isocyanates bzw. eines Gemisches, verdünnt mit der gleichen Menge an Toluol, zu der vorgelegten Aminlösung langsam hinzugetropft. Nach erfolgter Zugabe wird das Reaktionsgemisch noch 2 Stunden unter Rückfluss erhitzt. Anschließend wird auf Raumtemperatur abgekühlt, das entsprechende Festprodukt (Polyharnstoff) abfiltriert und im  
30 Vakuum getrocknet (3 bis 6 Stunden bei 130 bis 170 °C).

**Polyharnstoff-Beispiele (Angabe in Masse-Teilen)**

|      | <b>IPD</b> | <b>IPDI</b> | <b>IPDI-Trimer<sup>1)</sup></b> | <b>HDI-Trimer<sup>2)</sup></b> |
|------|------------|-------------|---------------------------------|--------------------------------|
| PH-1 | 70         | -           | 183                             | -                              |
| PH-2 | 70         | -           | -                               | 138                            |
| PH-3 | 70         | 61          | 61                              | -                              |
| PH-4 | 70         | -           | 91                              | 69                             |

<sup>1)</sup> VESTANAT T 1890, Degussa-Hüls AG

<sup>2)</sup> DESMODUR N 330, Bayer AG

Alle Produkte sind weiße/farblose, spröde Feststoffe, die in üblichen Lösemitteln unlöslich sind und nur unter Zersetzung oberhalb von 240 °C schmelzen.

Zum Einsatz der beschriebenen Polyharnstoffe, z.B. in Pulverlacken, ist es vorteilhaft, die Produkte zu mahlen und auf  $\leq 100 \mu\text{m}$  abzusieben.



**Patentansprüche:**

1. Polyharnstoff auf Basis von Isophorondiisocyanat (IPDI) und/oder Hexamethyldiisocyanat (HDI) und/oder deren Isocyanurate und Aminen mit einem NCO/NH<sub>2</sub>-Verhältnis von 0,9 bis 1,1 zu 1 und einer mittleren Molmasse von mindestens 5000.
2. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus IPDI und Isophorondiamin (IPD).
3. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus dem Isocyanurat des IPDI und IPD.
4. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus einem Gemisch von IPDI und IPDI-Isocyanurat und IPD.
5. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus HDI und IPD.
6. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus dem Isocyanurat des HDI und IPD.
7. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus einem Gemisch von HDI und HDI-Isocyanurat und IPD.
8. Polyharnstoff nach Anspruch 1, bestehend aus einem Gemisch von IPDI- und HDI-Isocyanurat und IPD.
9. Polyharnstoff nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass dieser als Feststoff vorliegt und in Lösemitteln unlöslich ist.
10. Verfahren zur Herstellung von Polyharnstoffen auf der Basis von IPDI und/oder HDI und/oder deren Isocyanurate und Aminen gemäß den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass das Amin in einem Lösemittel vorgelegt wird, zu dem anschließend unter Rühren das gegebenenfalls ebenfalls mit einem Lösemittel verdünnte Isocyanat hinzugegeben wird, danach

2 bis 3 Stunden unter Rückfluss des Lösemittels erhitzt, anschließend abgekühlt, das entstandene Polymer abgetrennt und anschließend 3 bis 6 Stunden bei 130 bis 170 °C im Vakuum getrocknet wird.

5 11. Verwendung der Polyharnstoffe gemäß den Ansprüchen 1 bis 8 als Rohstoffe in der Lackindustrie.

12. Verwendung der Polyharnstoffe gemäß den Ansprüchen 1 bis 8 zur Herstellung von Lacken, Farben und Beschichtungen.



**Zusammenfassung:**

Neue Polyharnstoffe auf der Basis von IPDI, HDI, deren Isocyanurate und Aminen, insbesondere IPD.

5

Die Erfindung betrifft neue Polyharnstoffe auf der Basis von Isophorondiisocyanat (IPDI) Hexamethylendiisocyanat (HDI) und/oder deren Isocyanurat und Aminen, insbesondere Isophorondiamin (IPD).



10